

IN THE U.S. PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant: KOZAKAI, Shouhei et al. Conf.:  
Appl. No.: NEW Group:  
Filed: August 21, 2003 Examiner:  
For: SILICONE ADHESIVE AND ADHESIVE FILM

L E T T E R

Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

August 21, 2003

Sir:

Under the provisions of 35 U.S.C. § 119 and 37 C.F.R. § 1.55(a), the applicant(s) hereby claim(s) the right of priority based on the following application(s):

<u>Country</u>	<u>Application No.</u>	<u>Filed</u>
JAPAN	2002-240373	August 21, 2002

A certified copy of the above-noted application(s) is(are) attached hereto.

If necessary, the Commissioner is hereby authorized in this, concurrent, and future replies, to charge payment or credit any overpayment to Deposit Account No. 02-2448 for any additional fee required under 37 C.F.R. §§ 1.16 or 1.17; particularly, extension of time fees.

Respectfully submitted,

BIRCH, STEWART, KOLASCH & BIRCH, LLP

By   
Andrew D. Meikle, #32,868

ADM/sll  
0171-1012P

P.O. Box 747  
Falls Church, VA 22040-0747  
(703) 205-8000

Attachment(s)

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

KOZAKAI et al.  
August 21, 2003  
BSLB, LLP  
(103) 205-8000  
0171-012P  
10f 1

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2002年 8月21日

出願番号

Application Number:

特願2002-240373

[ST.10/C]:

[JP2002-240373]

出願人

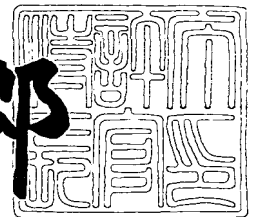
Applicant(s):

信越化学工業株式会社

2003年 2月21日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3009579

【書類名】 特許願

【整理番号】 14332

【提出日】 平成14年 8月21日

【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿

【国際特許分類】 C08L 83/00

【発明者】

【住所又は居所】 群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10 信越化学工業株式会社 シリコン電子材料技術研究所内

【氏名】 小堺 正平

【発明者】

【住所又は居所】 群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10 信越化学工業株式会社 シリコン電子材料技術研究所内

【氏名】 鈴木 章央

【特許出願人】

【識別番号】 000002060

【氏名又は名称】 信越化学工業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100079304

【弁理士】

【氏名又は名称】 小島 隆司

【選任した代理人】

【識別番号】 100114513

【弁理士】

【氏名又は名称】 重松 沙織

【選任した代理人】

【識別番号】 100120721

【弁理士】

【氏名又は名称】 小林 克成

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 003207

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 シリコーン接着剤及び接着フィルム

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 (A) (i) 下記一般式 (1)

【化 1】



(式中、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ は、置換もしくは非置換の一価炭化水素基、 $m$ は 500～10,000 の整数である。)

で示される分子鎖末端に水酸基を有するジオルガノポリシロキサンと、

(ii) 分子中に水酸基を有し、 $\text{R}^3_3\text{SiO}_{1/2}$ 単位と  $\text{SiO}_{4/2}$ 単位 ( $\text{R}^3$ は、水酸基又は置換もしくは非置換の一価炭化水素基である) からなるオルガノポリシロキサン共重合体 ( $\text{SiO}_{4/2}$ 単位に対する  $\text{R}^3_3\text{SiO}_{1/2}$ 単位のモル比が 0.5～1.5) と

を部分縮合させたオルガノポリシロキサン部分縮合物 100 重量部

(B) ケイ素原子に結合したアルコキシ基とアルケニル基、エポキシ基及びケイ素原子結合水素原子から選ばれる有機基もしくは原子とを有するシラン又はシロキサン化合物、エポキシ基とケイ素原子結合水素原子とを有するシラン又はシロキサン化合物、又はそれらの混合物 0.1～20 重量部

(C) 架橋剤

を含有する感圧及び永久接着性を有するシリコーン接着剤。

【請求項 2】 (C) 成分の架橋剤が、有機過酸化物である請求項 1 記載のシリコーン接着剤。

【請求項 3】 (C) 成分の架橋剤が、

(a) 一分子中に 2 個以上のケイ素原子結合水素原子を有するオルガノハイドロジェンポリシロキサン: (A), (B) 成分中のアルケニル基 1 モルに対してケイ素原子結合水素原子を 0.2～30 モル与える量

(b) 触媒量の白金系触媒

を含有する請求項 1 記載のシリコーン接着剤。

【請求項 4】 請求項 1 乃至 3 のいずれか 1 項記載の接着剤をフィルム状に成形したシリコーン接着フィルム。

【請求項 5】 請求項 1 乃至 3 のいずれか 1 項記載の接着剤をフィルム状に成形し、架橋硬化したシリコーンゴム接着フィルム。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、各種基材に対して感圧接着性を有し、加熱により永久接着性を発現し、特に半導体装置の製造に好適に用いられるシリコーン接着剤、及び該接着剤をフィルム状に成形した接着フィルムに関する。

【0002】

【従来の技術】

シリコーン感圧接着剤は、シリコーンオイル、シリコーンゴムと同様に、その構造体であるポリシロキサンの特徴として、耐熱性、耐寒性、電気絶縁性、耐候性、耐水性、無毒性を有し、更に有機ポリマーからなる感圧接着剤では、粘着し難いフッ素樹脂、シリコーンゴムに対しても粘着性に優れ、種々の基材に適応でき、広範囲の用途に使用されている。特に高純度、高耐熱性、低 Tg、低弾性率、高電気抵抗、低誘電率の点から電子部品の製造に好適に用いられている。

【0003】

従来のシリコーン感圧接着剤は、保護、固定用テープあるいはマスキングテープ、基材の貼り合わせ等の用途で、大きな接着力を必要としないものであったが、最近では、各種基材に対し、初期粘着固定、次いで永久接着する性能が要求されてきている。

【0004】

この一つの用途として、シリコーン樹脂の信頼性の面より半導体装置の製造に有効と考えられるダイシングダイボンドテープとして適用可能な粘着から永久接着に変化するシリコーン接着剤が期待されている。

## 【 0 0 0 5 】

半導体装置の製造においては、大口径のシリコンウエハが粘着テープ（ダイシングテープ）により固定され、ダイシング（切断分離）工程で半導体チップに加工され、次いでこのチップをダイシングテープより剥離して取り出され、リードフレームに硬化性の液状接着剤（ダイボンド剤）等で熱圧着固定して製造されている。最近では、工程の簡略化、液状接着剤による流動成分による半導体部品の汚染等が問題となっており、このダイシングテープの粘着層とダイボンド剤を兼ね備えた粘接着シートからなるダイシングーダイボンドテープが望まれている。この粘着（ダイシング）ーダイボンド層は、初期においてはダイシングに耐え、また取り出されたチップに付着可能な粘着力（固定）が必要であり、更にダイボンド工程ではリードフレームに強固に接着する必要がある。

## 【 0 0 0 6 】

このダイシングーダイボンドテープの粘着（ダイシング）ーダイボンド層として、特開平 9 - 6 7 5 5 8 号公報にポリイミド系樹脂のものが提案されているが、これらの樹脂ではガラス転移温度  $T_g$  が高く、高弾性率であるため、半導体部品の接着基材間の熱的な応力を緩和することが不十分である。そこで信頼性向上のため、応力緩和可能な低  $T_g$ 、低弾性率を有するシリコン樹脂等からなるダイシングーダイボンドテープが要求されてきている。

## 【 0 0 0 7 】

一方、粘着から永久接着に変化する性能を有するシリコン感圧接着剤としては、特開平 7 - 5 3 8 7 1 号、特開平 7 - 5 3 9 4 2 号、特開平 7 - 7 0 5 4 1 号公報等に水分、湿気により架橋硬化、接着するものが開示されている。しかしながら、これらの感圧接着剤は大きな接着力を得るまでに数日から数週間の長期間を必要とし、前記の半導体装置の製造に用いられるダイシングーダイボンド層としては、生産性が極端に悪いことから適用することができない。

## 【 0 0 0 8 】

## 【発明が解決しようとする課題】

本発明は、上記事情に鑑みなされたもので、ダイシングーダイボンド層に適用可能な初期粘着を有し、短時間の加熱圧着により基材に強固に接着するシリコー

ン接着剤、及び該接着剤をフィルム状に成形した接着フィルムを提供することを目的とする。

【0009】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記目的を達成するために鋭意検討した結果、鎖状のオルガノポリシロキサンと固体状のシリコーンレジンからなる架橋性のオルガノポリシロキサン部分縮合物に、下記（B）成分のシランもしくはシロキサン化合物を配合することにより得られたシリコーン接着剤が、シート状に成形して接着フィルムとすることができ、またダイシングダイボンド層に適用可能な初期粘着を有し、基材に短時間の加熱圧着で強固に接着することを見出し、本発明をなすに至った。

なお、本発明において、接着フィルムとは、いわゆるシート状、テープ状のものを包含する。

【0010】

即ち、本発明は、

（A）（i）下記一般式（1）

【化2】



（式中、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ は、置換もしくは非置換の一価炭化水素基、 $m$ は500～10,000の整数である。）

で示される分子鎖末端に水酸基を有するジオルガノポリシロキサンと、

（ii）分子中に水酸基を有し、 $\text{R}^3_3\text{SiO}_{1/2}$ 単位と $\text{SiO}_{4/2}$ 単位（ $\text{R}^3$ は、水酸基又は置換もしくは非置換の一価炭化水素基である）からなるオルガノポリシロキサン共重合体（ $\text{SiO}_{4/2}$ 単位に対する $\text{R}^3_3\text{SiO}_{1/2}$ 単位のモル比が0.5～1.5）と

を部分縮合させたオルガノポリシロキサン部分縮合物

100重量部



(B) ケイ素原子に結合したアルコキシ基とアルケニル基、エポキシ基及びケイ素原子結合水素原子から選ばれる有機基もしくは原子とを有するシラン又はシロキサン化合物、エポキシ基とケイ素原子結合水素原子とを有するシラン又はシロキサン化合物、又はそれらの混合物 0. 1 ~ 2 0 重量部

(C) 架橋剤

を含有する感圧及び永久接着性を有するシリコーン接着剤、及びこの接着剤をフィルム状に成形したシリコーン接着フィルム、フィルム状に成形し、架橋硬化したシリコーンゴム接着フィルムを提供する。

【 0 0 1 1 】

【発明の実施の形態】

以下、本発明について更に詳しく説明する。

【 0 0 1 2 】

< (A) 成分 >

本発明の (A) 成分は、上述したように (i) のジオルガノポリシロキサン成分と (i i) のオルガノシロキサンレジン成分を部分縮合したものである。(i) 成分は、下記一般式 (1) で示される分子鎖末端に水酸基を有するジオルガノポリシロキサンである。

【化 3】



(式中、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ は、置換もしくは非置換の一価炭化水素基、 $m$ は 5 0 0 ~ 1 0 , 0 0 0 の整数である。)

【 0 0 1 3 】

式中  $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ は、置換もしくは非置換の炭素数 1 ~ 2 0、特に炭素数 1 ~ 1 0 の一価の炭化水素基であり、これらの一価の炭化水素基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基等のアルキル基、フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基、クロロメチル基、3,

3, 3-トリフロロプロピル基等のハロゲン化アルキル基、ビニル基、アリル基、ブテニル基、ペンテニル基等のアルケニル基などが挙げられ、特にメチル基、ビニル基、フェニル基が好ましい。更に、後述する本発明の(C)架橋剤が、オルガノハイドロジェンポリシロキサンと白金系触媒である場合は、アルケニル基を含有するものである。また、有機過酸化物の場合もアルケニル基を含有することが好ましい。この場合のアルケニル基含有量は、 $R^1$ 、 $R^2$ の合計に対し、0.02~0.5モル%である。

## 【0014】

また、 $m$ は500~10,000の整数であり、500未満であると、本発明の接着剤において粘着性が得られず、10,000を超えると粘着層の成形が困難になる。好ましくは、1,000~5,000である。

## 【0015】

次に、(ii)成分は、分子中に水酸基を有し、 $R^3_3SiO_{1/2}$ 単位と $SiO_{4/2}$ 単位とのオルガノポリシロキサン共重合体である。

## 【0016】

ここで、 $R^3$ は水酸基、又は置換もしくは非置換の一価炭化水素基であり、置換もしくは非置換の一価炭化水素基としては、炭素数1~20、特に炭素数1~10のもの、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基等のアルキル基、フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基、クロロメチル基、3, 3, 3-トリフロロプロピル基等のハロゲン化アルキル基、ビニル基、アリル基、ブテニル基、ペンテニル基等のアルケニル基などが挙げられ、特にメチル基が好ましい。

## 【0017】

また、本発明のオルガノポリシロキサン共重合体は、分子中に水酸基を有するものであり、分子中に少なくとも1個の水酸基を有することが好ましい。

## 【0018】

上記 $SiO_{4/2}$ 単位に対する $R^3_3SiO_{1/2}$ 単位のモル比は、0.5~1.5であり、このモル比が0.5未満あるいは1.5を超えると本発明の組成物の粘着性が得られず、望ましくは0.6~1.1である。

## 【 0 0 1 9 】

これら (i) 成分及び (i i) 成分の配合割合は、(i) 成分 3 0 ~ 7 0 重量部に対して (i i) 成分 7 0 ~ 3 0 重量部であることが好ましく、より好ましくは (i) 成分 4 0 ~ 6 0 重量部に対して (i i) 成分 6 0 ~ 4 0 重量部である。

(i i) 成分が 3 0 重量部未満あるいは 7 0 重量部を超えると粘着性が得られない場合がある。なおこの場合、(i)、(i i) 成分の合計は 1 0 0 重量部である。

## 【 0 0 2 0 】

(A) 成分は、これら (i)、(i i) 成分の水酸基（シラノール基）を部分縮合したものであり、公知の方法であるアンモニアを縮合触媒として用いて、適当な相溶可能な溶剤中で加熱、脱水縮合することにより得ることができる。

ここで、(i) 成分の分子量は、(i i) 成分の分子量に比べて圧倒的に大きい（2 0 倍以上）ため、(i) 成分は (i i) 成分と縮合するが、(i) 成分と縮合する (i i) 成分は一部であり、大部分の (i i) 成分は縮合しない。また、(i i) 成分同士は縮合しないものであり、従って、(A) 成分は部分縮合物となる。

## 【 0 0 2 1 】

## &lt; (B) 成分 &gt;

次に、本発明の (B) 成分は、各種基材と加熱により結合するケイ素原子に結合したアルコキシ基及び／又はエポキシ基を含有したもので、ケイ素原子に結合したアルコキシ基とアルケニル基、エポキシ基及びケイ素原子結合水素原子（S i - H 基）から選ばれる有機基もしくは原子とを有するシラン又はシロキサン化合物、エポキシ基とケイ素原子結合水素原子（S i - H 基）とを有するシラン又はシロキサン化合物、又はそれらの混合物である。

## 【 0 0 2 2 】

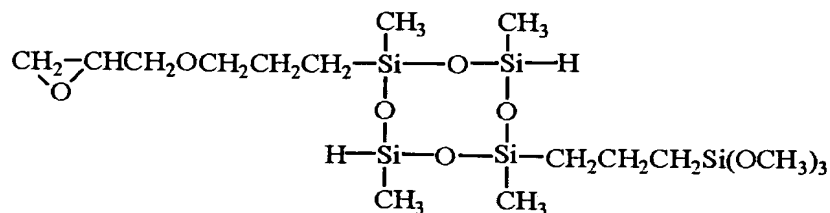
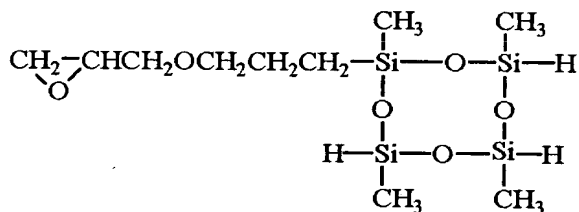
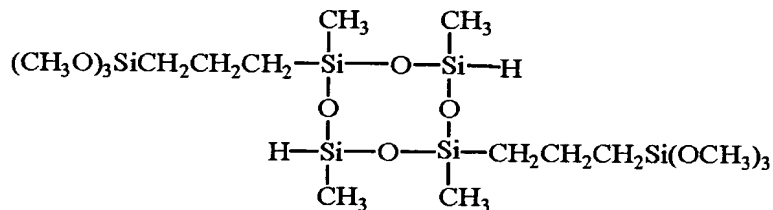
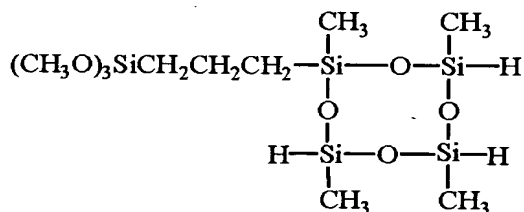
この場合、アルコキシ基としては、炭素数 1 ~ 6、特に 1 ~ 3 のものが好ましく、またアルケニル基としては、炭素数 2 ~ 1 0、特に 2 ~ 3 のものが好ましく、先に例示したものを挙げるができる。

## 【 0 0 2 3 】

これらの化合物としては、ビニルトリメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、アクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、アクリロキシプロピルトリエトキシシラン、メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、グリシドキシプロピルトリエトキシシラン等のシラン化合物を挙げることができる。またシロキサン化合物としては下記に示すものを挙げることができる。

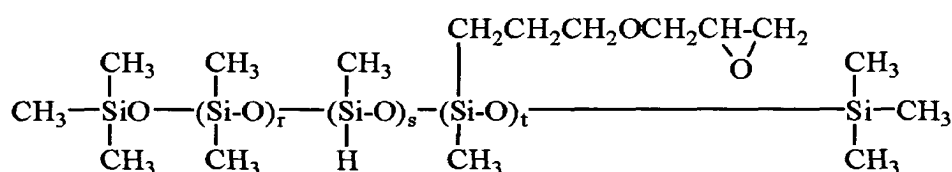
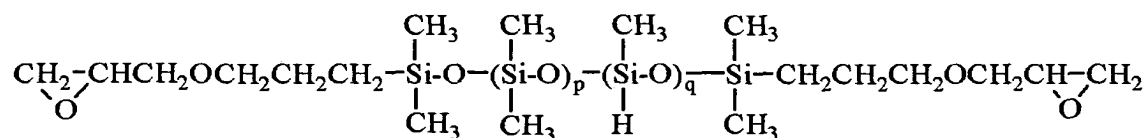
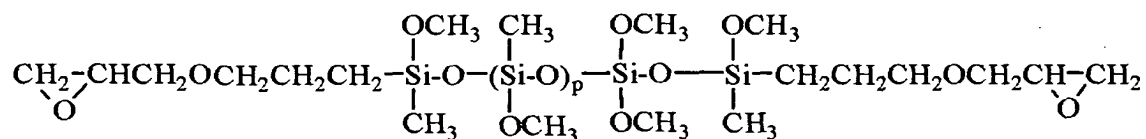
【 0 0 2 4 】

【化 4】



【 0 0 2 5 】

【化5】



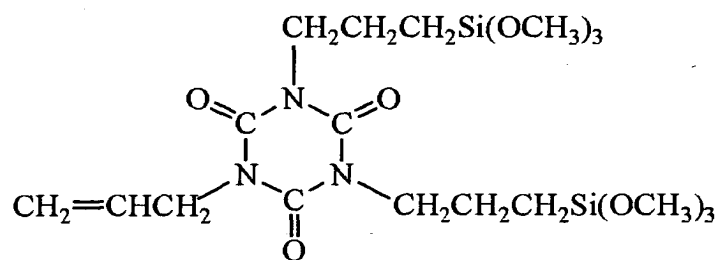
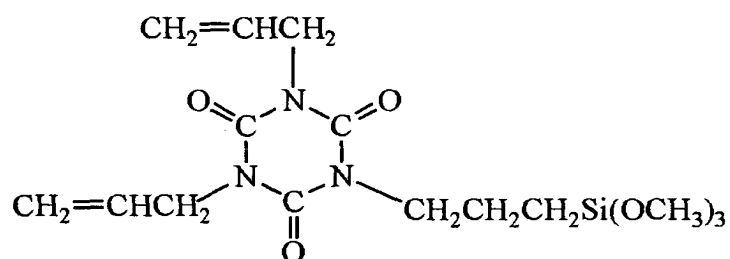
( $p, r$ は $0 \sim 50$ の整数、 $q, s, t$ は $1 \sim 50$ の整数である。)

【 0 0 2 6 】

また、下記に示すようなオルガノシランあるいはオルガノシロキサンで変性されたイソシアヌレート化合物も使用することができる。

【0027】

## 【化 6】



【 0 0 2 8 】

本発明においては、これらの化合物の中でも、オルガノシランあるいはオルガ

ノシロキサンで変性されたイソシアヌレート化合物が好ましい。

また、これら（Ｂ）成分の化合物は、特公昭 6 3 - 4 6 7 8 3 号公報、特公昭 5 3 - 1 3 5 0 8 号公報に開示されている方法等で合成することができる。

【 0 0 2 9 】

（Ｂ）成分の配合量は、（Ａ）成分 1 0 0 重量部に対して 0. 1 ~ 2 0 重量部であり、好ましくは 0. 5 ~ 1 0 重量部である。0. 1 重量部未満であると接着が不十分となり、2 0 重量部を超えると同様に十分な接着が得られなかったり、硬化不良となる。

【 0 0 3 0 】

<（Ｃ）成分>

（Ｃ）成分の架橋剤としては、（Ａ）成分の架橋及び（Ｂ）成分を（Ａ）成分に化学結合させるものであれば、特に限定されるものではないが、有機過酸化物、又はケイ素原子結合水素原子（Ｓｉ－Ｈ基）を含有するオルガノハイドロジェンポリシロキサンと白金系触媒であることが好ましい。

【 0 0 3 1 】

有機過酸化物による（Ａ）成分の架橋は、有機過酸化物の種類により、（Ａ）成分のケイ素原子に結合した炭化水素基同士の結合、あるいはアルケニル基同士の結合により架橋し、後者の場合には（Ａ）成分にアルケニル基を含有することが必要である。また、オルガノハイドロジェンポリシロキサンと白金系触媒による（Ａ）成分の架橋は、（Ａ）成分のアルケニル基と、オルガノハイドロジェンポリシロキサンのケイ素原子結合水素原子とが白金系触媒により付加架橋するもので、この場合も（Ａ）成分にアルケニル基を含有することが必要である。

【 0 0 3 2 】

また、有機過酸化物による（Ｂ）成分と（Ａ）成分の化学結合は、（Ａ）成分のケイ素原子に結合した炭化水素基と（Ｂ）成分の炭化水素基の有機過酸化物による結合、あるいは（Ｂ）成分と（Ａ）成分のアルケニル基同士の有機過酸化物による結合で、オルガノハイドロジェンポリシロキサンと白金系触媒による（Ｂ）成分と（Ａ）成分の化学結合は、（Ａ）成分と（Ｂ）成分のアルケニル基とオルガノハイドロジェンポリシロキサンとの白金系触媒による付加結合、あるいは

(A) 成分のアルケニル基と (B) 成分のケイ素原子結合水素原子との白金系触媒による付加結合である。

【 0 0 3 3 】

ここで、有機過酸化物としては、ベンゾイルパーオキサイド、ビス (4 - メチルベンゾイル) パーオキサイド、2, 4 - ジクロロベンゾイルパーオキサイド、p - クロロベンゾイルパーオキサイド、ジクミルパーオキサイド、ビス (t - ブチル) パーオキサイド、2, 5 - ジメチル - 2, 5 - ビス (t - ブチルパーオキシ) ヘキサン、t - ブチルクミルパーオキサイド等が挙げられる。

【 0 0 3 4 】

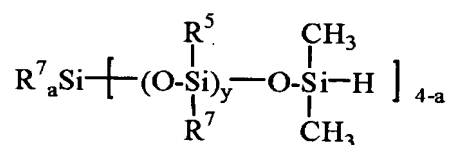
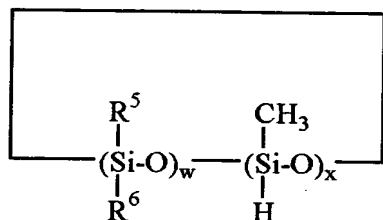
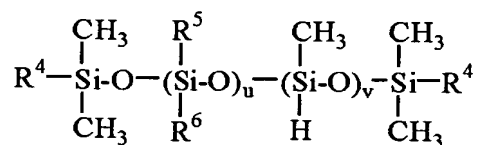
有機過酸化物の配合量は、(A) 成分と (B) 成分の合計量 1 0 0 重量部に対して 0. 1 ~ 1 0 重量部であることが好ましく、より好ましくは 0. 5 ~ 5 重量部である。

【 0 0 3 5 】

また、ケイ素原子結合水素原子 (S i - H 基) を含有するオルガノハイドロジェンポリシロキサン (a) としては、一分子中に 2 個以上のケイ素原子結合水素原子を有するものであれば、直鎖状、環状、分岐状いずれの構造のものでもよい。具体的には、下記式で示される構造のものが例示される。

【 0 0 3 6 】

【化 7】



(式中、 $\text{R}^4$ は水素原子又は一価炭化水素基、 $\text{R}^5$ 、 $\text{R}^6$ 、 $\text{R}^7$ は一価炭化水素基、 $u$ は0～500、 $v$ は2～500、 $x$ は2～6、 $w$ は0～4、 $y$ は0～300、 $a$ は0～2の整数である。)

【0037】

ここで、 $\text{R}^4 \sim \text{R}^7$ の一価炭化水素基としては、置換もしくは非置換の炭素数1～10の一価炭化水素基が好ましく、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基等のアルキル基、フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基、クロロメチル基、3，3，3-トリフッロプロピル基等のハロゲン化アルキル基などが挙げられる。

【0038】

このオルガノハイドロジェンポリシロキサン配合量は、(A)成分及び(B)成分のアルケニル基1モルに対してケイ素原子結合水素原子を0.2～30モル与える量であることが好ましい。ケイ素原子結合水素原子が0.2モル未満あるいは30モルを超えると、接着性が得られない場合がある。より好ましくは0.5～10モルとなる量である。

【0039】

白金系触媒(b)としては、塩化白金酸、アルコール変性塩化白金酸、白金の



オレフィン錯体、白金のビニルシロキサンとの錯体、白金黒、アルミナ、シリカなどの担体に固体白金を担持させたもの等が挙げられる。

【 0 0 4 0 】

この白金系触媒の配合量は、(A)成分と(B)成分の合計量に対し、白金系触媒中の白金金属として0.1～1000ppmが好ましく、より好ましくは1～500ppmである。

【 0 0 4 1 】

本発明のシリコーン接着剤は、(A)、(B)及び(C)成分を含有するものであるが、必要に応じて他の任意成分を本発明の目的を損なわない範囲で配合してもよい。例えば、本発明のシリコーン接着剤の塗布、成形を容易にするための希釈用有機溶剤として、トルエン、キシレン、ヘキサン、ヘプタン、エタノール、イソプロピルアルコール、アセトン、メチルエチルケトン等を用いることができる。また、作業性改善のため、架橋反応抑制剤として、アセチレンアルコール、窒素含有化合物、硫黄含有化合物、リン含有化合物等を加えてもよい。その他、シリカ微粉末、酸化チタン、カーボンプラック、導電性粒子等の充填剤、無機系あるいは有機系の顔料、染料、濡れ向上剤等の添加剤を配合してもよい。

【 0 0 4 2 】

本発明のシリコーン接着剤は、上記(A)～(C)成分、及び必要に応じて他の任意成分を常法に準じて混合することにより、製造することができる。

【 0 0 4 3 】

このようにして得られた本発明のシリコーン接着剤の第1の使用方法としては、目的接着基材の片面に目的の厚さになるように直接塗布するか、あるいは溶剤に溶解した状態で塗布、乾燥する。次いで、もう一方の基材面を圧着、粘着固定し、目的の工程(仮止め、切断)を達成した後、加熱して接着させる。

【 0 0 4 4 】

第2の使用方法は、フィルム状の成形体として用いるものである。この成形体は、離型剤を塗布したシート状の支持体上に直接塗布するか、あるいは溶剤に溶解した状態で塗布、乾燥することにより、フィルム状のシリコーン接着剤に加工し、この上面に離型シートをラミネートして得られる。使用時には、この成形体

の離型シートを剥がし、目的の基材に圧着し、この状態で目的の工程を達成した後、次いでもう一方の離型シートを剥がし、他の基材に圧着、加熱接着させる。あるいは目的の基材に圧着し、次いでもう一方の離型シートを剥離し、接着剤の付着した基材を他の基材に圧着、この状態で目的の工程を達成した後、加熱接着させる。ダイシングダイボンドテープへの適用は、第2の使用方法のうち、前者の方法である。すなわち、フィルム成形体の離型シートを剥がし、ウエハを圧着固定し、この状態でダイシング（切断分離）工程において半導体チップに加工された後、次にもう一方の離型シートからシリコン接着剤の付着した半導体チップを剥離して取り出し、リードフレームなどの基材に圧着、加熱接着させる方法により半導体装置を製造することができる。

この場合、接着フィルムは、接着剤をフィルム状に成形し、架橋硬化したものであってもよい。

#### 【0045】

フィルム状のシリコン接着剤の加工に用いるシート状の支持体としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエステル、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリエーテルイミド、ポリテトラフルオロエチレン、紙、金属箔等が挙げられる。

#### 【0046】

本発明のシリコン接着剤の膜厚は、特に制限はなく、目的に応じ選択することができ、通常0.01～0.1mmである。

#### 【0047】

溶剤に希釈した本発明のシリコン接着剤から、接着剤層に加工する乾燥条件は、得られる膜厚によるが、通常の膜厚では、室温で2時間以上、40～130℃で1～20分である。可能であれば穏和な条件が好ましい。130℃を超える温度であったり、加熱時間が長いと接着促進成分である（B）成分が変化し、接着が困難になる場合がある。また、本発明の接着剤層は、前記したように溶剤を除去した乾燥状態でもよいが、初期の粘着力が維持される限りにおいて、架橋した状態でもよい。この架橋条件も前記の乾燥条件と同様であるが、130℃を超える温度であったり、加熱時間が長いと接着が困難になる場合があり、穏和な条

件が好ましい。

【 0 0 4 8 】

また、本発明のシリコーン接着剤の適用できる基材としては、Fe、Al、Cr、Ni、Si、Cu、Ag、Au等の金属、ガラス、窒化ケイ素、炭化ケイ素等の無機物、セラミックス、エポキシ、ベークライト、ポリイミド、ポリアミド、ポリエステル、シリコーン樹脂等の有機物などが挙げられる。

【 0 0 4 9 】

各種基材間の本発明のシリコーン接着剤層による加熱接着条件は、100～250℃で15～60分であることが好ましい。

【 0 0 5 0 】

【実施例】

以下、合成例及び実施例と比較例を示し、本発明を具体的に説明するが、本発明は下記の実施例に制限されるものではない。なお、下記の例において部及び％はそれぞれ重量部と重量％を示す。

【 0 0 5 1 】

〔 (A) 成分の合成例 1 〕

(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>SiO<sub>1/2</sub>単位1、1モルとSiO<sub>4/2</sub>単位1モルの割合からなり、水酸基を100gr当たり、0.07モル含有するメチルポリシロキサンレジン50部と、末端が水酸基で封鎖された重合度2、000の生ゴム状のジメチルポリシロキサン50部をトルエン100部に溶解し、この溶液に28％のアンモニア水を0.5部添加し、室温で16時間攪拌、縮合反応を行った。次いで120～130℃に加熱し、共沸脱水により縮合水を除去し、不揮発分(150℃/30分)が40％になるようにトルエンを加えてシリコーン部分縮合物-Iを合成した。

【 0 0 5 2 】

〔 (A) 成分の合成例 2 〕

(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>SiO<sub>1/2</sub>単位0.75モルとSiO<sub>4/2</sub>単位1モルの割合からなり、水酸基を100gr当たり、0.05モル含有するメチルポリシロキサンレジン50部、末端が水酸基で封鎖された側鎖にビニル基を0.054モル％含有す

る重合度 2, 0 0 0 の生ゴム状のジメチルポリシロキサン 5 0 部、トルエン 1 0 0 部、2 8 % のアンモニア水 0 . 5 部を用いて合成例 - 1 と同様にして、不揮発分 ( 1 5 0 ° C / 3 0 分 ) が 4 0 % のシリコーン部分縮合物 - I I を合成した。

【 0 0 5 3 】

このようにして得られた ( A ) 成分としてのシリコーン部分縮合物から下記実施例に示される配合割合のシリコーン接着剤塗布液を調製した。

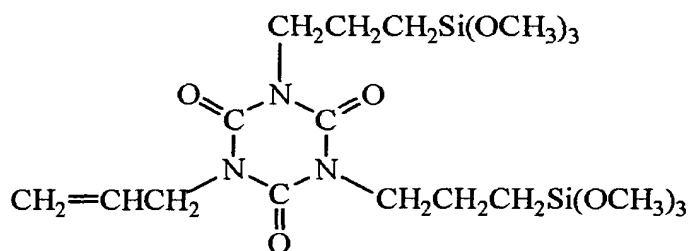
【 0 0 5 4 】

〔実施例 1〕

( A ) 成分としてシリコーン部分縮合物 - I を 1 0 0 部、( B ) 成分として下記構造式で示される化合物を 5 部、( C ) 成分としてビス ( 4 - メチルベンゾイル ) パーオキサイド 0 . 5 部を混合し、シリコーン接着剤塗布液を調製した。

【 0 0 5 5 】

【化 8】



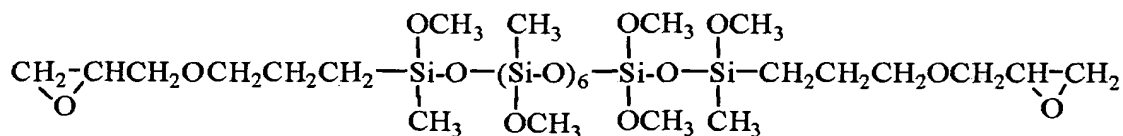
【 0 0 5 6 】

〔実施例 2〕

( A ) 成分としてシリコーン部分縮合物 - I を 1 0 0 部、( B ) 成分として下記構造式で示される化合物を 5 部、( C ) 成分としてビス ( 4 - メチルベンゾイル ) パーオキサイド 0 . 5 部を混合し、シリコーン接着剤塗布液を調製した。

【 0 0 5 7 】

【化 9】

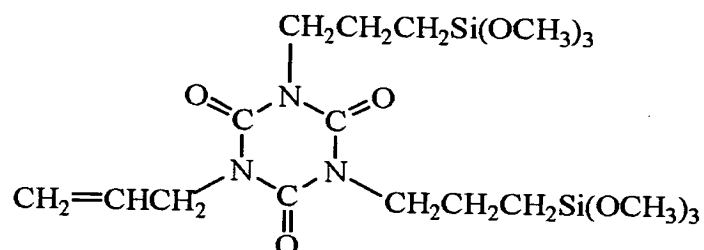


【 0 0 5 8 】

## [実施例 3]

(A) 成分としてシリコーン部分縮合物-I I を 100 部、(B) 成分として下記構造式で示される化合物を 5 部、

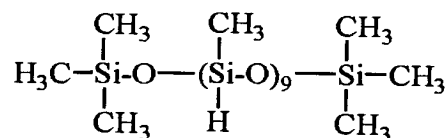
【化 10】



(C) 成分として下記構造式で示されるケイ素原子結合水素原子を有するオルガノポリシロキサン化合物を 1.29 部と白金量が 10 ppm となるような塩化白金酸の 2-エチルヘキサノール変性溶液、反応抑制剤として 3-メチル-1-ブチン-3-オール 0.05 部を混合し、シリコーン接着剤塗布液を調製した。

【0059】

【化 11】



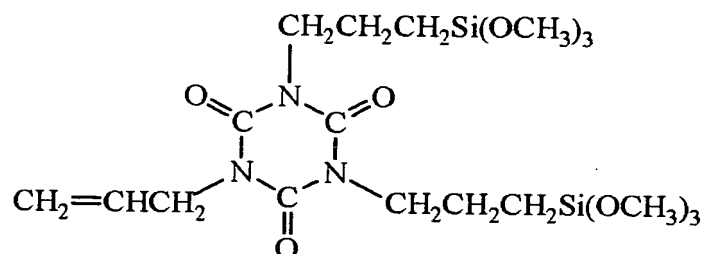
【0060】

## [実施例 4]

(A) 成分としてシリコーン部分縮合物-I I を 100 部、(B) 成分として下記構造式で示される化合物を 5 部、2,5-ジメチル-2,5-ビス(tert-ブチルパーオキシ)ヘキサン 1 部を混合し、シリコーン接着剤塗布液を調製した。

【0061】

【化 1 2】

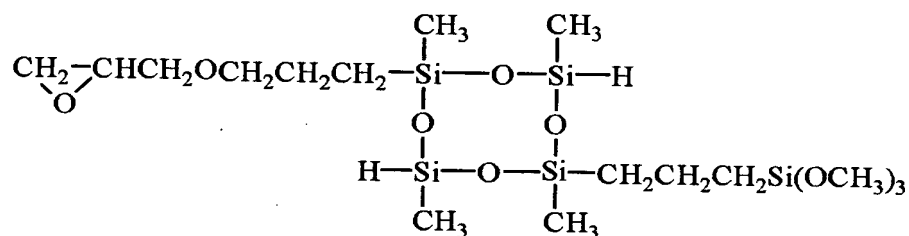


【 0 0 6 2】

〔実施例 5〕

(A) 成分としてシリコン部分縮合物－ⅠⅠを 1 0 0 部、(B) 成分として下記構造式で示される化合物を 3 部、

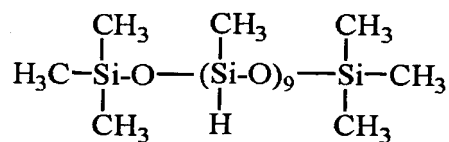
【化 1 3】



(C) 成分として下記構造式で示されるケイ素原子結合水素原子を有するオルガノポリシロキサン化合物を 1. 2 9 部と白金量が 1 0 p p m となるような塩化白金酸の 2-エチルヘキサノール変性溶液、反応抑制剤として 3-メチル-1-ブチン-3-オール 0. 0 5 部を混合し、シリコン接着剤塗布液を調製した。

【 0 0 6 3】

【化 1 4】



【 0 0 6 4】

〔比較例 1〕

実施例 1 において、(B) 成分を除き、(A) 成分としてシリコン部分縮合物－Ⅰを 1 0 0 部、(C) 成分としてビス(4-メチルベンゾイル)パーオキサイド 0. 5 部を混合し、シリコン粘着剤塗布液を調製した。

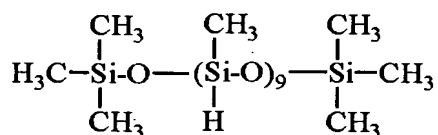
## 【 0 0 6 5 】

## 〔比較例 2〕

実施例 3 において、(B) 成分を除き、(A) 成分としてシリコーン部分縮合物-I I を 1 0 0 部、(C) 成分として下記構造式で示されるケイ素原子結合水素原子を有するオルガノポリシロキサン化合物を 0. 3 9 部と白金量が 1 0 p p m となるような塩化白金酸の 2-エチルヘキサノール変性溶液、反応抑制剤として 3-メチル-1-ブチン-3-オール 0. 0 5 部を混合し、シリコーン粘着剤塗布液を調製した。

## 【 0 0 6 6 】

## 【化 1 5】



## 【 0 0 6 7 】

## ＜粘着力の測定＞

実施例及び比較例のシリコーン塗布液を巾 2 5 m m、厚さ 2 5  $\mu$  m のポリイミドフィルム上に塗布し、室温で 6 時間放置及び 1 2 0  $^{\circ}$ C で 5 分間加熱の 2 条件でそれぞれ約 5 0  $\mu$  m のシリコーン粘着層を形成させ、粘着テープを作製した。作製したテープの塗布面を下側にして、S U S 2 7 C P のステンレス板（厚さ 1. 0 m m、巾 3 0 m m）の中央に貼り付け、この上からローラー（厚さ約 6 m m のゴムの層で被覆された重さ 2 0 0 0  $\pm$  5 0 g r）で、圧着速度約 3 0 0 m m / 分で 1 往復し、粘着テープを圧着した。これを 2 5  $\pm$  2  $^{\circ}$ C、5 0  $\pm$  5 % R H の恒温恒湿下に 3 0 分以上放置した後、粘着テープを 1 8 0  $^{\circ}$  に折り返し、3 0 0 m m / 分の速度で引き剥がしたときの剥離力を測定した。この結果を表 1 に示す。

## 【 0 0 6 8 】

## ＜接着力の測定＞

実施例及び比較例のシリコーン塗布液を、フッ素シリコーン離型剤を被覆した厚さ 5 0  $\mu$  m の P E T フィルム上に塗布し、室温で 6 時間放置及び 1 2 0  $^{\circ}$ C で 5 分間加熱の 2 条件でそれぞれ約 5 0  $\mu$  m のシリコーン接着層を形成させ、接着テ

ープを作製した。この接着テープを縦 2 5 m m × 横 1 0 m m に切断し、基材として、S U S、アルミニウム、シリコンウエハ、ガラス、ポリイミドフィルムに貼り付け、P E T フィルムを剥がした後、同種の基材で挟み、2 0 0 0 g r の加重で 1 分間圧着した。この試験体を 1 7 5 °C で 6 0 分加熱し、剪断接着力を測定した。この結果を表 1 に示す。

【 0 0 6 9 】

【表 1】

	成形条件	基材	実施例					比較例	
			1	2	3	4	5	1	2
粘着力 (N/25mm)	室温/6 時間	SUS	8.5	8.6	8.3	9.0	8.9	8.8	9.2
	120°C/5 分	SUS	8.9	8.9	6.3	9.0	6.5	9.0	6.5
接着力 (MPa)	室温/6 時間	SUS	3.2	2.6	3.2	3.1	2.5	0.25	0.31
		アルミニウム	3.4	2.7	3.3	3.4	2.8	0.27	0.35
		シリコンウエハ	3.1	2.4	2.9	3.0	2.7	0.22	0.31
		ガラス	3.3	2.8	3.4	3.3	2.9	0.26	0.36
		ポリイミド	3.1	2.2	3.1	3.0	2.4	0.25	0.33
	120°C/5 分	SUS	2.5	1.9	2.2	2.7	1.9	0.29	0.53
		アルミニウム	2.8	2.0	2.6	2.9	2.1	0.30	0.56
		シリコンウエハ	2.4	1.8	2.1	2.7	2.0	0.29	0.51
		ガラス	2.8	2.2	2.7	3.0	2.2	0.34	0.58
		ポリイミド	2.4	1.8	2.2	2.5	1.9	0.31	0.53

【 0 0 7 0 】

## 【発明の効果】

本発明のシリコーン接着剤は、初期において粘着力を有し、基材を固定することにより、目的の工程（基材の切断等）を達成することができる。更に、接着剤の付着した基材に他の基材を圧着、加熱することにより基材同士を強固に接着することができる。

また、本発明のシリコーン接着剤は、フィルム状成形体として供給できるため、取り扱いが容易で、液状接着剤のように周囲に対して流動成分による汚染がない。上記の特徴により、本発明の接着フィルムは、半導体装置の製造に用いられるダイシングダイボンドテープとして好適に用いることができる。



【書類名】 要約書

【要約】

【解決手段】 (A) (i) 分子鎖末端に水酸基を有するジオルガノポリシロキサンと、(ii) 分子中に水酸基を有し、 $R^3_3SiO_{1/2}$ 単位と $SiO_{4/2}$ 単位( $R^3$ は水酸基又は一価炭化水素基)からなるオルガノポリシロキサン共重合体とを部分縮合させたオルガノポリシロキサン部分縮合物

(B) ケイ素原子に結合したアルコキシ基とアルケニル基、エポキシ基及びケイ素原子結合水素原子から選ばれる有機基もしくは原子とを有するシラン又はシロキサン化合物、エポキシ基とケイ素原子結合水素原子とを有するシラン又はシロキサン化合物、又はそれらの混合物

(C) 架橋剤

を含有する感圧及び永久接着性を有するシリコーン接着剤。

【効果】 本発明のシリコーン接着剤は、初期において粘着力を有し、接着剤の付着した基材に他の基材を圧着、加熱することにより基材同士を強固に接着することができる。

【選択図】 な し

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000002060]

1. 変更年月日 1990年 8月22日  
[変更理由] 新規登録  
住 所 東京都千代田区大手町二丁目6番1号  
氏 名 信越化学工業株式会社